

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 9月26日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-292758

出 願 人

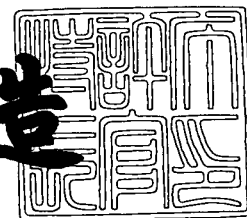
Applicant(s):

株式会社島津製作所  
三菱電機株式会社

2001年 7月 4日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3062624

【書類名】 特許願

【整理番号】 K1000272

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01L 21/31

【発明者】

    【住所又は居所】 京都府京都市中京区西ノ京桑原町 1 番地 株式会社島津  
                            製作所内

    【氏名】 吉岡 尚規

【発明者】

    【住所又は居所】 京都府京都市中京区西ノ京桑原町 1 番地 株式会社島津  
                            製作所内

    【氏名】 川本 達司

【発明者】

    【住所又は居所】 京都府京都市中京区西ノ京桑原町 1 番地 株式会社島津  
                            製作所内

    【氏名】 川尾 満志

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内二丁目 2 番 3 号 三菱電機株式会  
                            社内

    【氏名】 松野 繁

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内二丁目 2 番 3 号 三菱電機株式会  
                            社内

    【氏名】 山田 朗

【発明者】

    【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内二丁目 2 番 3 号 三菱電機株式会  
                            社内

    【氏名】 宮下 章二

【発明者】

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三菱電機株式会社  
社内

【氏名】 内川 英興

【特許出願人】

【識別番号】 000001993

【氏名又は名称】 株式会社島津製作所

【特許出願人】

【識別番号】 000006013

【氏名又は名称】 三菱電機株式会社

【代理人】

【識別番号】 100084412

【弁理士】

【氏名又は名称】 永井 冬紀

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 004732

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 気化器

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路の先端部から噴霧する噴霧部と、噴霧された前記液体材料を気化する気化部とを備え、気化された前記液体材料を CVD 成膜装置へと供給する気化器において、

前記移送管路は、気液 2 相流で前記液体材料が移送される内側配管と、前記内側配管が隙間を介して内挿されるとともに霧化用ガスを移送する外側配管とから成る二重配管構造を有し、

前記内側配管が隙間を介して貫挿される孔部が形成され、前記外側配管により移送された霧化用ガスを前記隙間から前記気化部へと噴出させるオリフィス部材を、前記内側配管の先端部に設けたことを特徴とする気化器。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の気化器において、

気化された前記液体材料が再凝縮するのを防止する気化面が形成され、前記内側配管の先端部に近接して前記噴霧部の先端に設けられるノズルリングを備え、

前記オリフィス部材を PEEK (polyether ether ketone) で形成して前記ノズルリングと前記外側配管の先端との間に挟持するとともに、前記オリフィス部材と前記外側配管の先端との間に PTFE (polytetrafluoroethylene) から成るシール材を配設したことを特徴とする気化器。

【請求項 3】 請求項 2 に記載の気化器において、

前記ノズルリングは、前記噴霧部の先端に螺合する第 1 部材と、前記第 1 部材とは別体で形成され、前記オリフィス部材と前記第 1 部材との間に挟持される第 2 部材とから成ることを特徴とする気化器。

【請求項 4】 請求項 1 に記載の気化器において、

気化された前記液体材料が再凝縮するのを防止する気化面が形成されるとともに、前記内側配管の先端部に近接して前記気化部に固定されるノズルリングを備え、

前記オリフィス部材を PEEK (polyether ether ketone) で形成して前記ノ

ズリングと前記外側配管の先端との間に挟持するとともに、前記オリフィス部材と前記外側配管の先端との間に P T F E (polytetrafluoroethylene) から成るシール材を配設したことを特徴とする気化器。

【請求項 5】 請求項 1 ～請求項 4 のいずれかに記載の気化器において、

前記内側配管を前記噴霧部に固定する継手として、メタルガスケットおよびそのメタルガスケットを挟持するように設けられる一对の継手部材を有するガスケット式シール継手を備え、前記一对の継手部材の一方を前記噴霧部に固設するとともに、前記一对の継手部材の他方を前記内側配管に固設して、前記ガスケット式シール継手の軸方向締め付け量の調整により、前記内側配管先端部の前記オリフィス部材からの突出量を調整可能としたことを特徴とする気化器。

【請求項 6】 液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路の先端部から噴霧する噴霧部と、噴霧された前記液体材料を気化する気化部とを備え、気化された前記液体材料を C V D 成膜装置へと供給する気化器において、

前記移送管路中において前記液体材料を環状噴霧流の状態で供給することを特徴とする気化器。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、C V D 成膜に用いられ、液体有機金属や有機金属溶液等の液体材料を気化する気化器に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

半導体デバイス製造工程における薄膜形成方法の一つとして M O C V D (Metal Organic Chemical Vapor Deposition) 法があるが、スパッタ等比べて膜質、成膜速度、ステップカバレッジなどが優れていることから近年盛んに利用されている。M O C V D 装置に用いられている C V D ガス供給法としてはバブリング法や昇華法などがあるが、液体有機金属若しくは有機金属を有機溶剤に溶かした液体材料を C V D リアクタ直前で気化して供給する方法が、制御性および安定性

の面でより優れた方法として注目されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、従来の気化器では、液体材料を気化させた際に未気化残渣が発生し易く、気化器に詰まりが発生したり、残渣によるパーティクルが成膜条件に影響を与える等して、成膜の安定性や再現性に問題があった。また、気化量をそれ程大きくすることができず、プロセス上のマージンがとれないという課題もあった。

【0004】

本発明の目的は、液体有機金属や有機金属溶液等を気化する気化器において、液体材料の霧化をより効果的に行わせ、未気化残渣やパーティクルの発生を低減することができる気化器を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

発明の実施の形態を示す図2、図4、図5および図10に対応付けて説明する。

(1) 図2、図4および図5に対応付けて説明すると、請求項1の発明は、液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路200の先端部から噴霧する噴霧部20と、噴霧された液体材料を気化する気化部21とを備え、気化された液体材料をCVD成膜装置へと供給する気化器2に適用され、移送管路200は、気液2相流で液体材料が移送される内側配管200aと、内側配管200aが隙間を介して内挿されるとともに霧化用ガスを移送する外側配管200bとから成る二重配管構造を有し、内側配管200aが隙間を介して貫挿される孔部が形成され、外側配管200bにより移送された霧化用ガスを前記隙間から気化部21へと噴出させるオリフィス部材212を、内側配管200aの先端部に設けたことにより上述の目的を達成する。

(2) 図5に対応付けて説明すると、請求項2の発明は、請求項1に記載の気化器において、気化された液体材料が再凝縮するのを防止する気化面211aが

形成され、内側配管 2 0 0 a の先端部に近接して噴霧部 2 0 の先端に設けられるノズルリング 2 1 1 を備え、オリフィス部材 2 1 2 を P E E K (polyether ether ketone) で形成してノズルリング 2 1 1 と外側配管 2 0 0 b の先端との間に挟持するとともに、オリフィス部材 2 1 2 と外側配管 2 0 0 b の先端との間に P T F E (polytetrafluoroethylene) から成るシール材 2 1 3 を配設したものである。

(3) 図 1 0 に対応付けて説明すると、請求項 3 の発明は、請求項 2 に記載の気化器において、ノズルリング 2 1 4 は、噴霧部 2 0 の先端に螺合する第 1 部材 2 1 4 a と、第 1 部材 2 1 4 a とは別体で形成され、オリフィス部材 2 1 2 と第 1 部材 2 1 4 a との間に挟持される第 2 部材 2 1 4 b とから成る。

(4) 請求項 4 の発明は、請求項 1 に記載の気化器において、気化された液体材料が再凝縮するのを防止する気化面 2 1 5 a が形成されるとともに、内側配管 2 0 0 a の先端部に近接して気化部 2 1 に固定されるノズルリング 2 1 5 を備え、オリフィス部材 2 1 2 を P E E K (polyether ether ketone) で形成してノズルリング 2 1 5 と外側配管 2 0 0 b の先端との間に挟持するとともに、オリフィス部材 2 1 2 と外側配管 2 0 0 b の先端との間に P T F E (polytetrafluoroethylene) から成るシール材 2 1 3 を配設したものである。

(5) 図 3 および図 5 に対応付けて説明すると、請求項 5 の発明は、請求項 1 ~ 請求項 4 のいずれかに記載の気化器において、内側配管 2 0 0 a を噴霧部 2 0 に固定する継手として、メタルガスケット 2 3 3 およびそのメタルガスケット 2 2 3 を挟持するように設けられる一対の継手部材 2 2 0 a, 2 2 0 b を有するガスケット式シール継手 2 2 を備え、一対の継手部材 2 2 0 a, 2 2 0 b の一方 2 2 0 b を噴霧部 2 0 に固設するとともに、一対の継手部材 2 2 0 a, 2 2 0 b の他方 2 2 0 a を内側配管 2 0 0 a に固設して、ガスケット式シール継手の軸方向締め付け量の調整により、内側配管先端部のオリフィス部材 2 1 2 からの突出量 h を調整可能としたものである。

(6) 図 2 に対応付けて説明すると、請求項 6 の発明は、液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路 2 0 0 の先端部から噴霧する噴霧部 2 0 と、噴霧された液体材料を気化す

る気化部 2 1 とを備え、気化された液体材料を C V D 成膜装置へと供給する気化器 2 に適用され、移送管路 2 0 0 中において液体材料を環状噴霧流の状態で供給するようにしたものである。

## 【 0 0 0 6 】

なお、本発明の構成を説明する上記課題を解決するための手段の項では、本発明を分かり易くするために発明の実施の形態の図を用いたが、これにより本発明が発明の実施の形態に限定されるものではない。

## 【 0 0 0 7 】

## 【発明の実施の形態】

以下、図 1 ～図 1 1 を参照して本発明の実施の形態を説明する。図 1 は気化装置全体の概略構成を示す図である。1 は気化器 2 に液体有機金属や有機金属溶液等（以下では、これらを液体材料と呼ぶ）を供給する液体材料供給装置であり、供給された液体材料は気化器 2 で気化されて C D V 装置に設けられた C V D リアクタに供給される。例えば、液体有機金属としては C u や T a などの有機金属があり、有機金属溶液としては B a , S r , T i , P b , Z r などの有機金属を有機溶剤に溶かしたものである。

## 【 0 0 0 8 】

液体材料供給装置 1 に設けられた材料容器 3 A , 3 B , 3 C には、M O C V D に用いられる液体材料 4 A , 4 B , 4 C が充填されている。例えば、B S T 膜（BaSrTi酸化膜）を成膜する場合には、原料である B a , S r , T i を有機溶剤 T H F（tetrahydrofuran）で溶解したものが液体材料 4 A , 4 B , 4 C として用いられる。また、溶剤容器 3 D には T H F が溶剤 4 D として充填されている。なお、容器 3 A ～ 3 D は原料の数に応じて設けられ、必ずしも 4 個とは限らない。

## 【 0 0 0 9 】

各容器 3 A ～ 3 D には、チャージガスライン 5 と移送ライン 6 A ～ 6 D とが接続されている。各容器 3 A ～ 3 D 内にチャージガスライン 5 を介してチャージガスが供給されると、各容器 3 A ～ 3 D に充填されている液体材料 4 A ～ 4 C および溶剤 4 D の液面にガス圧が加わり、液体材料 4 A ～ 4 C および溶剤 4 D が各移送ライン 6 A ～ 6 D へとそれぞれ押し出される。移送ライン 6 A ～ 6 D に押し出



された各液体材料 4 A ~ 4 C および溶剤 4 D は、ガス圧によってさらに移送ライン 6 E へと移送され、この移送ライン 6 E 内で混合状態となる。

【 0 0 1 0 】

移送ライン 6 E にはキャリアガスライン 7 からキャリアガスが供給されるようになり、キャリアガス、液体材料 4 A ~ 4 C および溶剤 4 D は気液 2 相流状態となって気化器 2 へと供給される。気化器 2 にはキャリアガスライン 7 を介してキャリアガスが供給されており、気化された材料はキャリアガスによって C V D リアクタへと送られる。

【 0 0 1 1 】

なお、チャージガスおよびキャリアガスには窒素ガスやアルゴンガス等の不活性ガスが用いられる。また、移送ライン 6 A ~ 6 E における液体材料 4 A ~ 4 C や溶剤 4 D の滞留量はできるだけ低減するのが好ましく、本実施の形態では、移送ライン 6 A ~ 6 C には 1 / 8 インチの配管を用いている。

【 0 0 1 2 】

各移送ライン 6 A ~ 6 D には、マスフローメータ 8 A ~ 8 D および遮断機能付き流量制御バルブ 9 A ~ 9 D が設けられている。マスフローメータ 8 A ~ 8 D で液体材料 4 A ~ 4 C および溶剤 4 D の流量を各々監視しつつ流量制御バルブ 9 A ~ 9 D を制御して、液体材料 4 A ~ 4 C および溶剤 4 D の流量が適切となるようにしている。なお、移送ライン 6 E の気化器直前にミキサを設けて、液体材料の混合状態をより向上させるようにしても良い。さらに、各液体材料 4 A ~ 4 C の流量を制御する流量制御バルブ 9 A ~ 9 D に代えて、プランジャポンプ等のポンプを用いて流量制御するようにしても良い。

【 0 0 1 3 】

図 2 は気化器 2 を正面から見た断面図である。気化器 2 は液体材料 4 A ~ 4 C を噴霧して霧状とするノズル部 2 0 と、ノズル部 2 0 から噴霧された液体材料をさらに気化する気化チャンバ 2 1 とを備えている。ノズル部 2 0 には二重管 2 0 0 が設けられており、移送ライン 6 E から導入された液体材料 4 A ~ 4 C の混合液およびキャリアガスライン 7 から導入されたキャリアガスは、この二重管 2 0 0 に導かれる。なお、このキャリアガスは液体材料 4 A ~ 4 C を霧化するために

用いられるものであり、以下では霧化用ガスと呼ぶことにする。

【0014】

気化チャンバ21には加熱用のヒータh1～h6が設けられており、気化チャンバ21は液体材料4A～4Cの気化温度より高い温度に保持されている。ノズル部20から二点鎖線23で示すように鉛直下向きに噴霧された液体材料4A～4Cは、気化チャンバ21内で気化された後に、排出口24を介して不図示のCVDリアクタへと送られる。

【0015】

22は移送ライン6Eを気化器のノズル部20に接続するための継手であり、図3に継手22部分の拡大図を示した。継手22は、一対のスリーブ220a、220b、ナット221、プラグ222、メタルガスケット223とで構成されている。移送ライン6Eの配管224はスリーブ220aを軸方向に貫通するように配設されており、配管224は溶接等によりスリーブ220aに固設されている。スリーブ220a、220bの互いに対向する面にはリング状に突出するシール面S1、S2がそれぞれ形成されており、各シール面S1、S2の間にメタルガスケット223を挟持するように配設してプラグ222をナット221にねじ込むことにより、配管224がノズル部20に固定されることになる。配管224は1/16インチのSUS管が用いられ、符号Cで示す部分においてスウェーピングにより外径1mm以下の細いチューブに加工されている。なお、この細いチューブの部分の寸法については、流量等を考慮して最適な太さに設定される。以下では、符号Cより下側の細管部分を内側配管200aと呼ぶことにする。

【0016】

図4は図2のA部拡大図であり、上述した二重管200は内側配管200aと外側配管200bとから成る。内側配管200aには液体材料4A～4Cとキャリアガスとの気液流体が流れ、内側配管200aと外側配管200bとの間の環状空間には霧化用ガスが流れる。外側配管200bは溶接等により水冷ブロック201に固設されており、内側配管200aは上述したスリーブ220a（図3参照）に固設されている。二重配管200の周囲には外側配管200bに接して

冷却ロッド 2 0 2 が設けられており、図 2 に示すように冷却ロッド 2 0 2 は二重配管 2 0 0 の下端部分まで延在している。

【 0 0 1 7 】

冷却ロッド 2 0 2 の外周上部には雄ねじ部 2 0 3 が形成されており、水冷ブロック 2 0 1 の凹部 2 0 4 に形成された雌ねじ部 2 0 5 に前記雄ねじ部 2 0 3 をねじ込むようにして、冷却ロッド 2 0 2 を水冷ブロック 2 0 1 に固定する。図 2 に示すように、水冷ブロック 2 0 1 には冷却水路 2 0 6 が形成されており、冷却水パイプ 2 0 7 を介して外部から供給された冷却水がこの冷却水路 2 0 6 を循環することにより水冷ブロック 2 0 1 が冷却される。冷却ロッド 2 0 2 は水冷ブロック 2 0 1 により冷却され、さらに、冷却ロッド 2 0 2 は二重配管 2 0 0 を冷却する。

【 0 0 1 8 】

図 2 の水冷ブロック 2 0 1 の図示下側には冷却ブロック 2 0 2 の周囲を覆うケーシング 2 0 8 が設けられており、ケーシング下部には固定用フランジ 2 0 8 a が形成されている。このフランジ 2 0 8 a を気化チャンバ 2 1 に固定することにより、ノズル部 2 0 が気化チャンバ 2 1 に取り付けられる。なお、本実施の形態では、水冷ブロック 2 0 1 と冷却ロッド 2 0 2 とを別個に形成してネジ締結する構造としたが、これらを一体に形成しても良い。また、冷却ロッド 2 0 2 には銅のように熱伝導性の良い物質が用いられる。

【 0 0 1 9 】

次に、ノズル部 2 0 の先端部分の構造について図 5 の B 部拡大図を参照して説明する。ケーシング 2 0 8 の先端部分 2 0 8 b は薄く形成されており、外側配管 2 0 0 b の先端部と溶接等により接合されている。そのため、ケーシング 2 0 8 の内部空間 2 0 9 と気化チャンバ空間 2 1 0 とは隔離されており、冷却ロッド 2 0 2 は気化ガスによる腐食から防止されている。内部空間 2 0 9 は図 2 に示すようにパイプ 2 1 1 を介して真空排気できる構造となっており、内部空間 2 0 9 を真空状態とすることにより、対流によるケーシング 2 0 8 から冷却ロッド 2 0 2 への熱浸入を防止している。

【 0 0 2 0 】

内側配管 2 0 0 a は外側配管 2 0 0 b よりも図示下方に突出し、さらに、オリフィス部材 2 1 2 の中心部に形成された孔を貫通して突出している。内側配管 2 0 0 a と外側配管 2 0 0 b との間を図示下方に流れてきた霧化用ガスは、オリフィス部材 2 1 2 と外側配管 2 0 0 b との間に形成された隙間、例えば、1 mm 以下の微小隙間を通して気化チャンバ空間 2 1 0 へと噴出される。この霧化用ガスによって、液体材料 4 A ~ 4 C は内側配管 2 0 0 a から排出される際に霧化され、霧状の液体材料 4 A ~ 4 C が気化チャンバ空間 2 1 0 に噴霧される。

【 0 0 2 1 】

なお、本実施の形態の気化器では、内側配管 2 0 0 a の先端がオリフィス部材 2 1 2 の下方に僅かに突出した状態で使用するのが好ましい。この突出量 h の調整は、図 3 に示した継手 2 2 の締め付け力を変えて行う。具体的には、メタルシールに必要な締め付け力で継手 2 2 を締め付けたときに、内側配管 2 0 0 a の先端がオリフィス部材 2 1 2 の下面とほぼ同一となるように内側配管 2 0 0 a の軸方向寸法を設定し、継手 2 2 の増し締めにより突出量 h の微調整を行う。

【 0 0 2 2 】

オリフィス部材 2 1 2 は、ノズルリング 2 1 1 によってシール材 2 1 3 を挟持するようにケーシング先端部 2 0 8 b に固定される。ケーシング 2 0 8 の先端に袋ナット形式で取り付けられるノズルリング 2 1 1 には、円錐面状の気化面 2 1 1 a が形成されている。ノズルリング 2 1 1 はノズル部 2 0 から噴霧された液体材料 4 A ~ 4 C がノズル部 2 0 先端部分に再凝縮するのを防止するものであり、気化チャンバ 2 1 に固定されるフランジ 2 0 8 a (図 2 参照) を介して流入する熱により高温に保たれている。その結果、霧化された液体材料 4 A ~ 4 C が気化面 2 1 1 a に付着しても、未気化残渣が生じることはない。

【 0 0 2 3 】

上述したケーシング 2 0 8, ノズルリング 2 1 1, 配管 2 0 0 a, 2 0 0 b 等は、腐食等を考慮して SUS 等で形成される。一方、オリフィス部材 2 1 2, シール材 2 1 3 は、ノズルリング 2 1 1 から冷却ロッド 2 0 2 への熱浸入が低減されるように、断熱性の良い樹脂等が用いられる。特に、オリフィス部材 2 1 2 やシール材 2 1 3 は液体材料 4 A ~ 4 C に対する耐食性も要求されるので、断熱性

、耐熱性、耐薬品性に優れた PTFE (polytetrafluoroethylene) で形成するのが望ましい。また、高温環境やノズルリング 211 の締め付けによるオリフィス部材 212 の変形を防止するため、より硬度の高い PEEK (polyether ether ketone) で形成するようにしても良い。

【0024】

このように、断熱材から成るオリフィス部材 212 やシール材 213 は、ノズルリング 211 から冷却ロッド 202 への熱浸入を低減することによって冷却ロッド 202 の温度上昇を防止しているが、逆に、ノズルリング 211 が冷却ロッド 202 により冷却されてノズルリング 211 の温度が低下するのを防止している。

【0025】

《冷却ロッド 202 による冷却効果の説明》

液体材料 4A~4C を気化器で気化させる際には、未気化残渣の発生や熱履歴による液体材料 4A~4C の変質を防止するために、液体材料 4A~4C の減圧と加熱とをほぼ同時に、かつ、瞬時に行う必要がある。本実施の形態では、二重配管 200 の軸方向に延在する冷却ロッド 202 を二重配管 200 の周囲を覆うように配設し、かつ、冷却ロッド 202 を二重配管 200 の噴出部付近まで設けた。それにより、内側配管 200a を流れる液体材料 4A~4C は、気化チャンバ空間 210 に噴出される直前まで十分に冷却されることになる。

【0026】

ここで、冷却ロッド 202 とケーシング 208 との間には断熱空間 209 が形成され、冷却ロッド 202 とケーシング 208 とは薄肉の先端部 208b のみが接触している。さらに、高温のノズルリング 211 との間には断熱性に優れるオリフィス部材 212 およびシール材 213 とが介在するため、高温の気化チャンバ 21 やノズルリング 211 から冷却ロッド 202 へ熱が浸入するのを低減することができる。

【0027】

図 6 は冷却ロッド 202 の冷却効果を説明する図であり、気化チャンバ 21 を 250℃ に加熱したときの内側配管 200a 内の軸方向温度分布データを示した

ものである。冷却水の温度は  $8^{\circ}\text{C}$ 、空間 209 の圧力は  $1333\text{ Pa}$  ( $=10\text{ Torr}$ ) とした。図 6 において、縦軸は内側配管 200a の温度、横軸は冷却ロッド 202 の先端から図示上方に測った距離を表しており、マイナスの距離は冷却ロッド 202 の先端から下方に突出している部分を表している。図 6 に示すように、 $250^{\circ}\text{C}$  という高温環境下においても、冷却ロッド 202 の冷却効果により内側配管 200a の温度は十分低温に保たれており、例えば、ロッド先端から  $10\text{ mm}$  の位置では約  $50^{\circ}\text{C}$  となっている。

【0028】

図 7 は、気化前後における液体材料の温度および圧力の変化を定性的に示したものであり、(a) は本実施の形態の気化器に関するものであり、(b) および (c) は従来の気化器に関するものである。図 7 において、縦軸は温度および圧力を、横軸は時間をそれぞれ表しており、図の左側領域は液体状態における温度および圧力を示し、図の右側領域は気化後の温度および圧力を表している。

【0029】

図 7 の (b) は、特開平 5-253402 号公報に記載の装置を用いた場合の温度および圧力の変化を示したものである。特開平 5-253402 号公報に記載の装置では、気化器にポンプで送られてきた液体材料は、気化器に設けられた高温のディスクに接触して加熱された後に、減圧→気化を行うというプロセスが採用されている。また、図 7 の (c) は、特表平 8-508315 号公報に記載の装置を用いた場合の温度および圧力の変化を示したものである。特表平 8-508315 号公報に記載の装置では、加圧された液体材料を加熱した後に、減圧下に置かれたメッシュに染み込ませて気化させている。

【0030】

図 7 の (b) および (c) のいずれの場合にも、液体材料が室温・高圧状態から高温・減圧状態に変化するまでの中間状態 D が比較的長くなっている。この中間状態では熱履歴により液体材料が変質しやすく、未気化残渣の発生や気化器の詰まり等が生じやすい。一方、本実施の形態の気化器では、液体材料 4A~4C は内側配管 200a から噴出される直前まで冷却ロッド 202 により冷却されているため、中間状態 D は図 7 (a) に示すように僅かな時間となり、液体材料 4

A～4 Cの変質，未気化残渣および気化器の詰まり等を低減させることができる。

### 【0031】

#### 《噴霧性能についての説明》

上述したように、内側配管200 aは外径1 mm以下の細管であって、以下に説明するように、管内の気液2相流が環状噴霧流となるように内側配管内200 aを流れる液体材料4 A～4 Cおよびキャリアガスの流量を調整する。ここで、環状噴霧流とは、気液2相流の液相流量に比べて気相流量が多く、管壁に液膜が存在し、気相の管断面中心部には多数の液滴を伴っている流れである。なお、安定な噴霧を行うための流量条件については後述する。

### 【0032】

また、噴霧性能は上述した液体材料4 A～4 Cおよびキャリアガスの流量や配管寸法だけでなく、外側配管200 bを流れる霧化用ガスの流量にも依存する。図8は、内側配管200 a内の液流量，ガス流量および外側配管200 b内のガス流量と噴霧安定性との関係を説明する図である。なお、図8に示した測定では、内側配管200 aを流れる液体としてTHFを用い、キャリアガスおよび霧化用ガスとして窒素ガスを用いた。

### 【0033】

図8において、縦軸はキャリアガスの流量（SCCM）を表し、横軸はTHFの流量（cc/min）を表している。この測定では、噴霧状態を、連続した噴霧が観察される「安定噴霧」と、不連続に液滴が突沸して気化チャンバ内圧力が大きく変動する「不安定噴霧」とに区別して実験を行った。図8では、○印で安定噴霧のデータを表し、×印で不安定噴霧を表した。なお、霧化用ガスについては、圧力1333 Pa（=10 Torr）～6666 Pa（=50 Torr）で流量50 SCCMとし、THFの1次圧は1.7 MPaとした。また、気化チャンバ温度は250℃とした。

### 【0034】

図8に示すように、THF流量が多いほど噴霧が不安定になり、キャリアガスが多いほど安定に噴霧する傾向がある。また、キャリアガスが多い状態ではTH

Fの流量に上限があり、ラインL1がその限界を表している。例えば、キャリアガス流量=400SCCMとラインL1との交点では、THF流量は約1.7(cc/min)であるので、キャリアガス流量が400SCCMのときには、THFは1.7(cc/min)を超えて流せない。そして、ラインL1より下側で、かつ、ラインL2より左側の領域F1においては噴霧を安定的に行うことができ、ラインL1より下側で、かつ、ラインL2より右側の領域F2では噴霧が不安定となることが図8から分かる。

【0035】

例えば、内側配管200aを流れる液体金属材料および溶剤THFの混合液流量を0.8(cc/min)とした場合には、キャリアガス流量150(SCCM)、噴霧ガス流量50(SCCM)が好ましく、混合液流量を1.2(cc/min)とした場合には、キャリアガス流量250(SCCM)、噴霧ガス流量50(SCCM)が好ましい。

【0036】

なお、図4の内側配管200aの外径に対してオリフィス部材212の孔径eを調節することにより、オリフィス部材212と内側配管200aとの隙間を流れる霧化用ガスの流速を適当な値に設定する。さらに、この隙間を流れる霧化用ガスによって、内側配管200aの先端部分はオリフィス部材212の孔に対してセンタリングされる。

【0037】

《冷却ロッドの変形例》

図9は冷却ロッド202の変形例を示す図であり、(a)は冷却ロッド202Bの断面図、(b)は冷却ロッド202Cの断面図である。図9(a)は図2の冷却ロッド202と水冷ブロック201とを一体構造としたものであり、水冷部251とロッド部252を備え、銅のような高熱伝導性の材料により形成される。このように一体構造とした冷却ロッド202Bでは、上述した冷却ロッド202と水冷ブロック201とをネジ構造により一体とした場合に比べて、ロッド部252の冷却効率が向上する。

【0038】



図 9 (b) の冷却ロッド 2 0 2 C は、図 9 (a) の冷却ロッド 2 0 2 B にヒートパイプ構造をさらに追加したものである。冷却ロッド 2 0 2 C では、水冷部 2 5 3 に設けられた冷却水路 2 0 6 に近接する部分からロッド部 2 5 4 の先端にかけて円環状空洞 2 5 5 が形成されており、空洞 2 5 5 内にはアルコール等の冷媒が封入されている。空洞 2 5 5 内に封入された冷媒は高温部である空洞 2 5 5 の下部で蒸発し、低温部である空洞 2 5 5 の上部で液化する。そのため、ロッド部 2 5 4 の熱伝導に加えて、冷媒を介したロッド部 2 5 4 から水冷部 2 5 3 への熱移動により、冷却ロッド 2 0 2 B に比べて冷却効率の向上を図ることができる。なお、冷却ロッド 2 0 2 C では部材に空洞 2 5 5 を形成してヒートパイプ構造としたが、図 9 (a) に示す冷却ロッド 2 0 2 B に市販のヒートパイプを埋め込んだ構造としても良い。

【 0 0 3 9 】

図 2, 3 に示した水冷ブロック 2 0 1 および冷却ロッド 2 0 2 では、互いの固定をネジ構造としたが圧接により一体としても良い。圧接構造を採用した場合、例えば、銅の冷却ブロック 2 0 2 に対して水冷ブロック 2 0 1 を異種金属である SUS で形成した場合でも、異種金属界面の接伝達効率を向上させることができる。

【 0 0 4 0 】

《ノズルリングの変形例》

図 1 0 は図 5 に示したノズルリング 2 1 1 の変形例を示す図である。図 1 0 の (a) は 2 分割構造のノズルリング 2 1 4 を示したものであり、ノズルリング 2 1 4 は袋ナット部 2 1 4 a と押さえリング 2 1 4 b とで構成されている。図 5 に示したノズルリング 2 1 1 では、ノズルリング 2 1 1 を締め付けてケーシングに固定する際に、オリフィス部材 2 1 2 も一緒に回転してしまうという不具合が生じる。しかし、図 1 0 (a) に示す 2 分割構造のノズルリング 2 1 4 の場合には、袋ナット部 2 1 4 a を締め付けても、オリフィス部材 2 1 2 は押さえリング 2 1 4 b により押さえられ、袋ナット部 2 1 4 a と一緒に回るのを防止することができる。

【 0 0 4 1 】

図 1 0 の ( b ) はノズルリング 2 1 1 の他の変形例である。ノズルリング 2 1 5 はフランジ 2 1 6 にネジ構造により固定されており、フランジ 2 1 6 はボルト 2 1 7 により気化チャンバ 2 1 の内壁面に固定されている。その結果、気化チャンバ 2 1 からノズルリング 2 1 5 への熱移動がより大きくなり、ノズルリング 2 1 5 を気化チャンバ 2 1 とほぼ同一温度に保つことができ、気化面 2 1 5 a における未気化残渣の発生を防止することができる。ノズルリング 2 1 5 の軸方向位置は、ノズルリング 2 1 5 をフランジ 2 1 6 へねじ込むことによりを調整する。なお、ここではノズルリング 2 1 5 とフランジ 2 1 6 とを別体としたが、両者を一体に形成しても良い。

【 0 0 4 2 】

ところで、ノズルリング 2 1 1 , 2 1 4 , 2 1 5 に霧化された液体金属材料が付着し難いように、それらの表面に P T F E をコーティングしても良い。これにより、未気化残渣の発生がより低減される。また、ノズルリング 2 1 1 , 2 1 4 , 2 1 5 の表面に酸化膜などの耐食性の黒色被膜を形成することにより、気化チャンバ 2 1 からの輻射熱を吸収しやすくして、ノズルリング 2 1 1 , 2 1 4 , 2 1 5 をより気化チャンバ 2 1 に近い温度に保つようにしても良い。

【 0 0 4 3 】

《移送ライン 6 E と内側配管 2 0 0 a との接続に関する説明》

次に、移送ライン 6 E と内側配管 2 0 0 a との接続について説明する。上述した実施の形態では、図 3 の C に示すように、移送ライン 6 E の配管 2 2 4 をスウェーピングにより絞り込んで外径 1 m m 以下の細管に加工し、その細管を内側配管 2 0 0 a として使用した。その結果、液体金属材料とキャリアガスとを混合した気液流体の流れを滑らかにし、液体金属材料の詰まりや材料変質の原因となるデッドボリュームを排除するようにした。

【 0 0 4 4 】

図 1 1 は接続方法の他の例を示す図である。図 1 1 の ( a ) は配管 2 2 4 の中に内側配管 2 0 0 a の上端部を内挿して溶接したものであり、( b ) は ( a ) と同様に内側配管 2 0 0 a を内挿して配管 2 2 4 を外周からカシメた構造としたものである。いずれも低コストであることが特徴である。また、図 1 1 ( c ) に示

すものでは、配管 2 2 4 が固設されたスリーブ 2 2 0 a にネジ部 2 3 1 を有する円筒孔 2 3 2 が形成されている。そして、先端部外周に P T F E のリング状シール材 2 3 3 を装着した内側配管 2 0 0 a を円筒孔 2 3 2 に挿入し、内側配管 2 0 0 a に外挿されたセットスクリー 2 3 4 を円筒孔 2 3 2 のネジ部 2 3 1 に締め込む。その結果、内側配管 2 0 0 a 外周面と円筒孔 2 3 2 の内周面とがシール材 2 3 3 によりシールされる。この場合、比較的安価であり、詰まりの生じやすい内側配管 2 0 0 a のみを容易に交換することができる。

## 【 0 0 4 5 】

上述した実施の形態では、液体材料 4 A ~ 4 C と接する金属部分、例えば、配管 2 0 0 a , 2 0 0 b , 2 2 4 や継手 2 2 を S U S 製としたが、より耐食性の高い材質である T i や T i 合金 ( T i N 等 ) を用いても良い。

## 【 0 0 4 6 】

以上説明した実施の形態と特許請求の範囲の要素との対応において、二重管 2 0 0 は移送管路を、ノズル部 2 0 は噴霧部を、気化チャンバ 2 1 は気化部を、袋ナット部 2 1 4 a は第 1 部材を、押さえリング 2 1 4 b は第 2 部材をそれぞれ構成する。

## 【 0 0 4 7 】

## 【発明の効果】

以上説明したように、請求項 1 ~ 請求項 5 の発明によれば、気液 2 相流の液体材料を内側配管から噴出するとともに、内側配管とオリフィス部材との隙間から霧化用ガスを噴出することにより、液体材料の霧化をより効果的に行うことができる。その結果、未気化残渣の発生やパーティクルの発生を低減させることができる。

請求項 2 ~ 請求項 4 の発明によれば、ノズルリングと移送管路を構成する外側配管との間に断熱性のオリフィス部材およびシール部材を配することにより、ノズルリングから移送配管への熱浸入を低減することができる。

請求項 5 の発明によれば、内側配管先端部のオリフィス部材からの突出量を容易に調整することができ、最適な噴霧条件に調整しやすい。

請求項 6 の発明によれば、移送管路中の液体材料を環状噴霧流とすることによ

り噴霧部の霧化性能を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

気化装置全体の概略構成を示す図である。

【図 2】

気化器 2 を詳細に示す断面図である。

【図 3】

継手 2 2 の拡大図である。

【図 4】

図 2 の A 部の拡大図である。

【図 5】

図 2 の B 部の拡大図である。

【図 6】

冷却ロッド 2 0 2 の冷却効果を説明する図である。

【図 7】

気化前後における液体材料の温度および圧力の変化を定性的に示す図であり、(a) は本実施の形態の気化器に関するもので、(b) および (c) は従来の気化器に関するものである。

【図 8】

噴霧安定性を説明する図である。

【図 9】

冷却ロッド 2 0 2 の変形例を示す図であり、(a) は第 1 の変形例を、(b) は第 2 の変形例をそれぞれ示す。

【図 1 0】

ノズルリング 2 1 1 の変形例を示す図であり、(a) は第 1 の変形例を、(b) は第 2 の変形例をそれぞれ示す。

【図 1 1】

配管 2 2 4 および内側配管 2 0 0 a の他の接続方法を示す図であり、(a) は第 1 の例、(b) は第 2 の例、(c) は第 3 の例をそれぞれ示す。

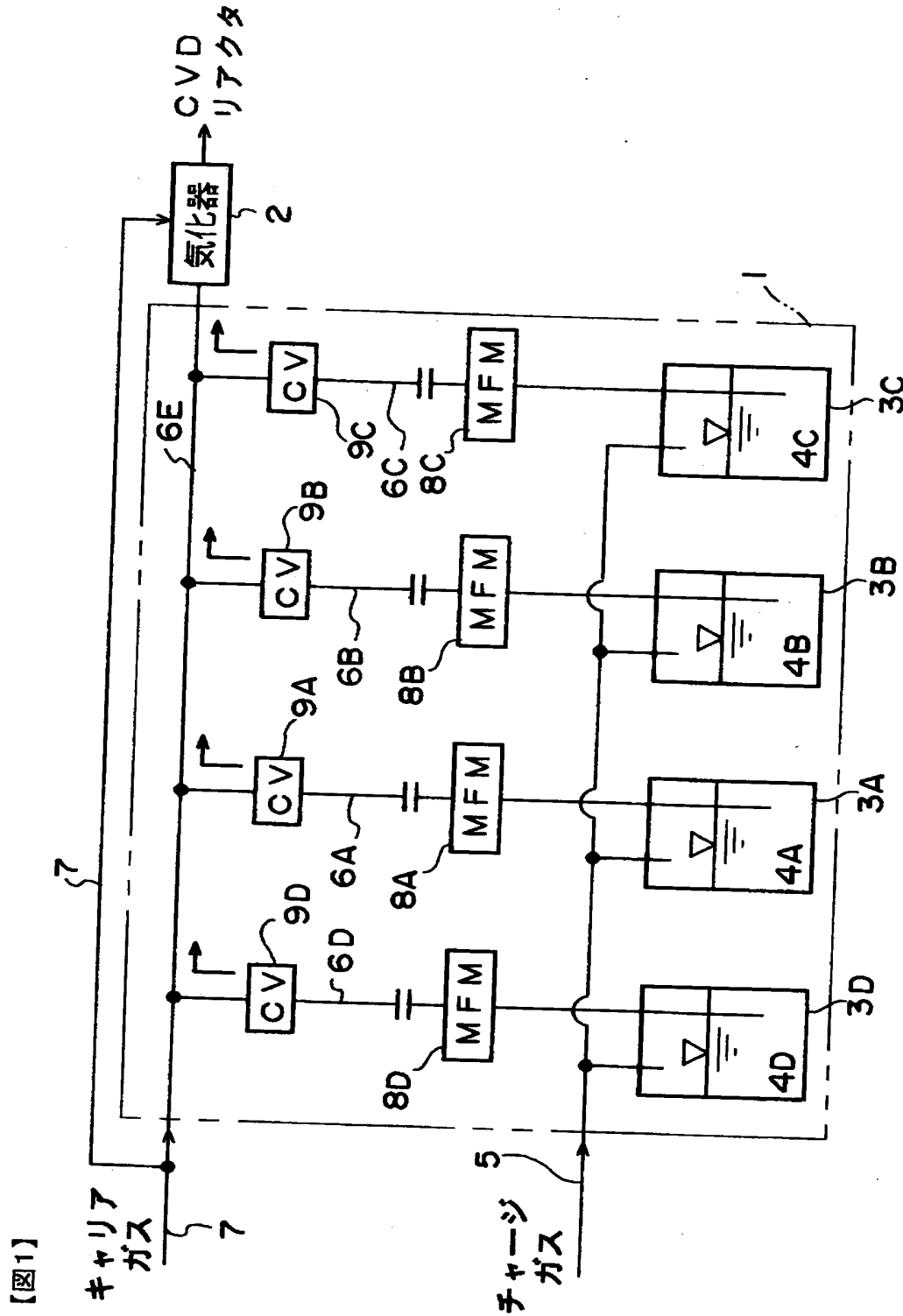
【符号の説明】

- 2 気化器
- 2 0 ノズル部
- 2 1 気化チャンバ
- 2 0 0 2重管
- 2 0 0 a 内側配管
- 2 0 0 b 外側配管
- 2 0 1 水冷ブロック
- 2 0 2, 2 0 2 B, 2 0 2 C 冷却ロッド
- 2 0 8 ケーシング
- 2 1 1, 2 1 4, 2 1 5 ノズルリング
- 2 1 2 オリフィス部材

【書類名】

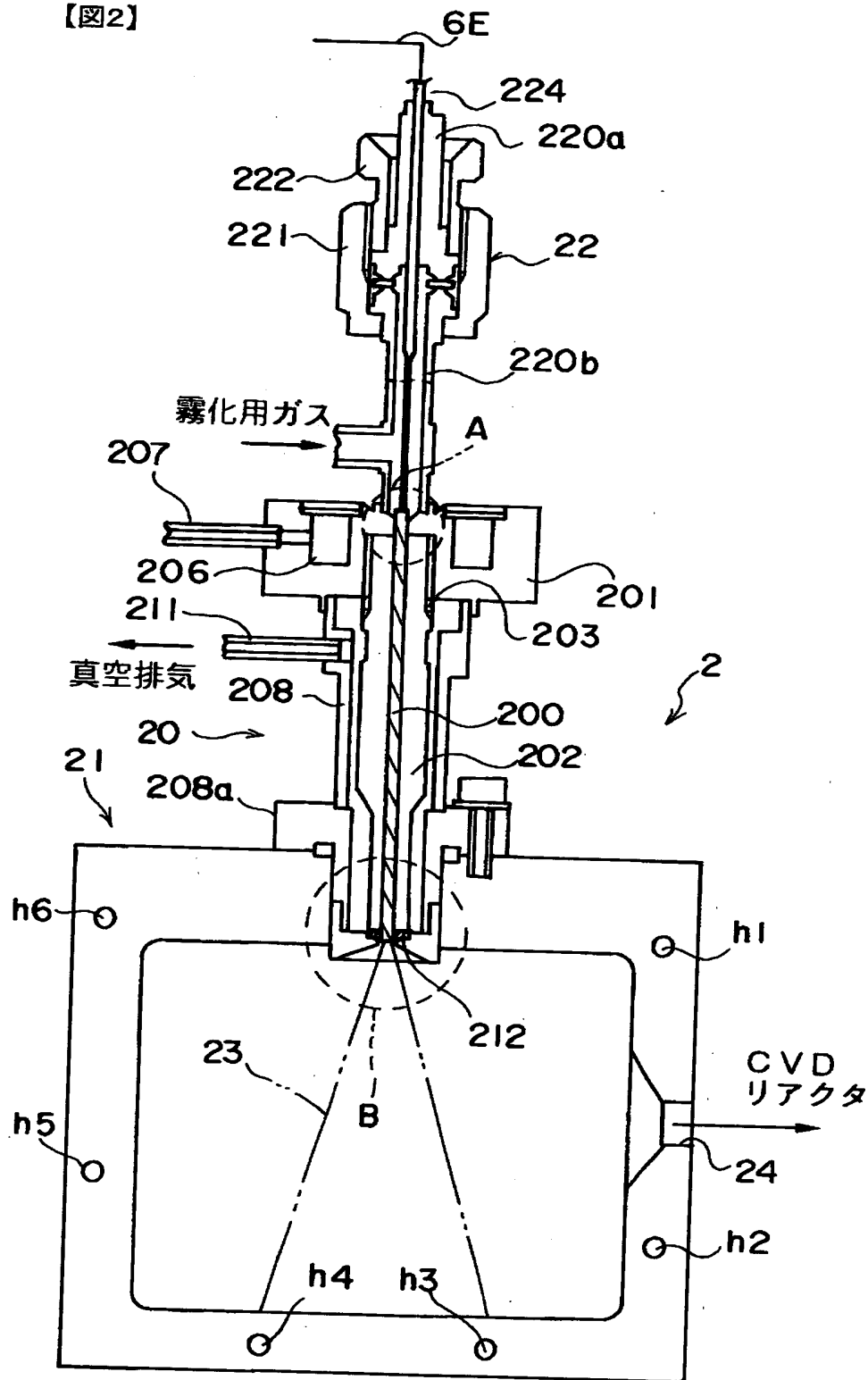
図面

【図1】



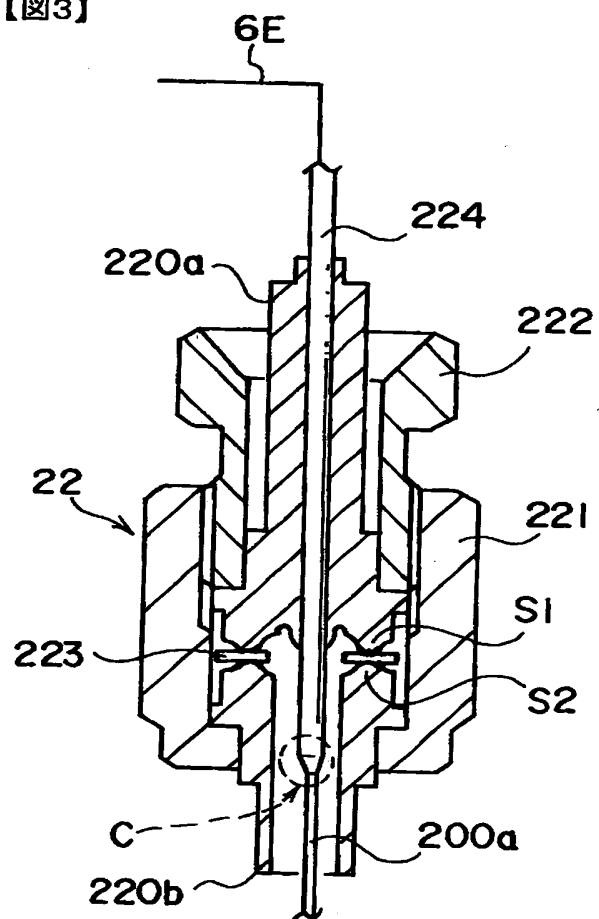
【図2】

【図2】



【図3】

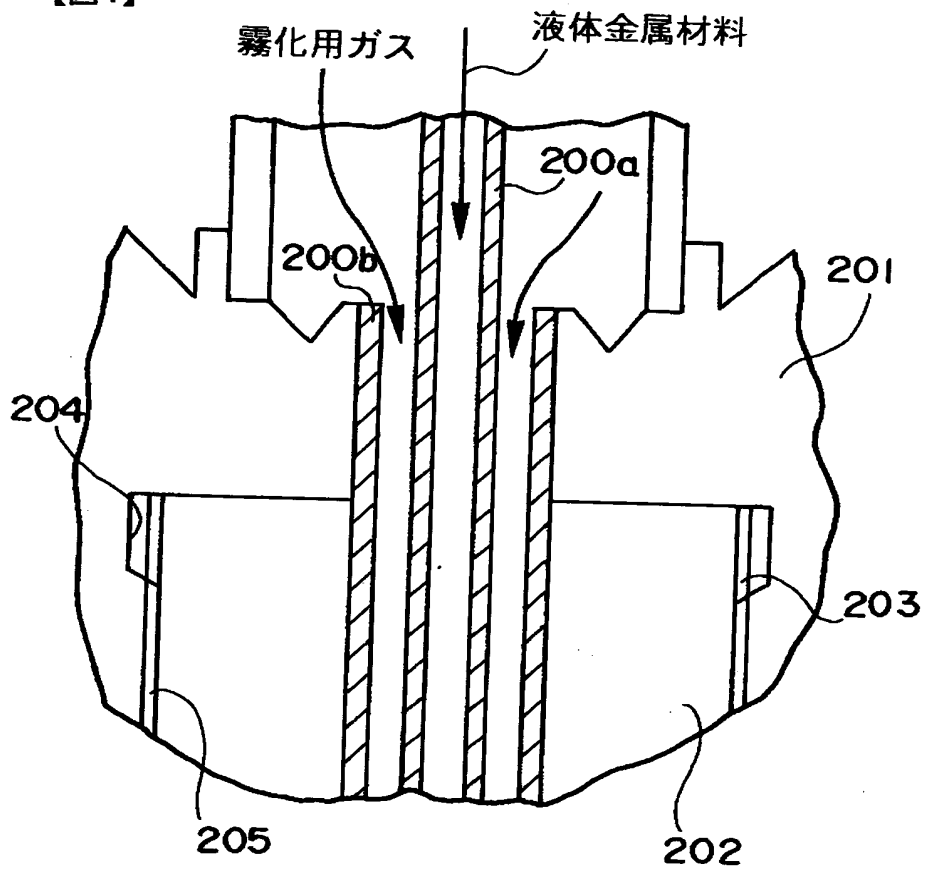
【図3】





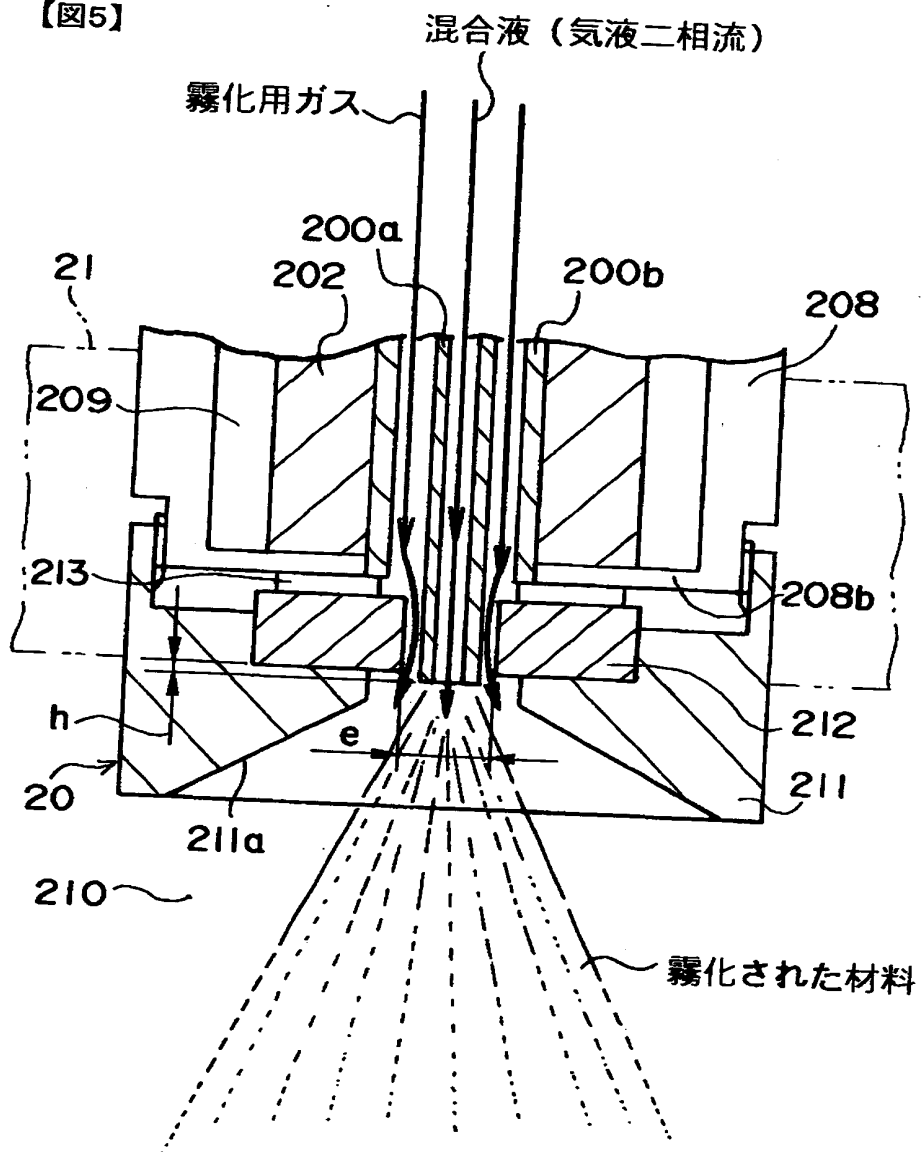
【図4】

【図4】

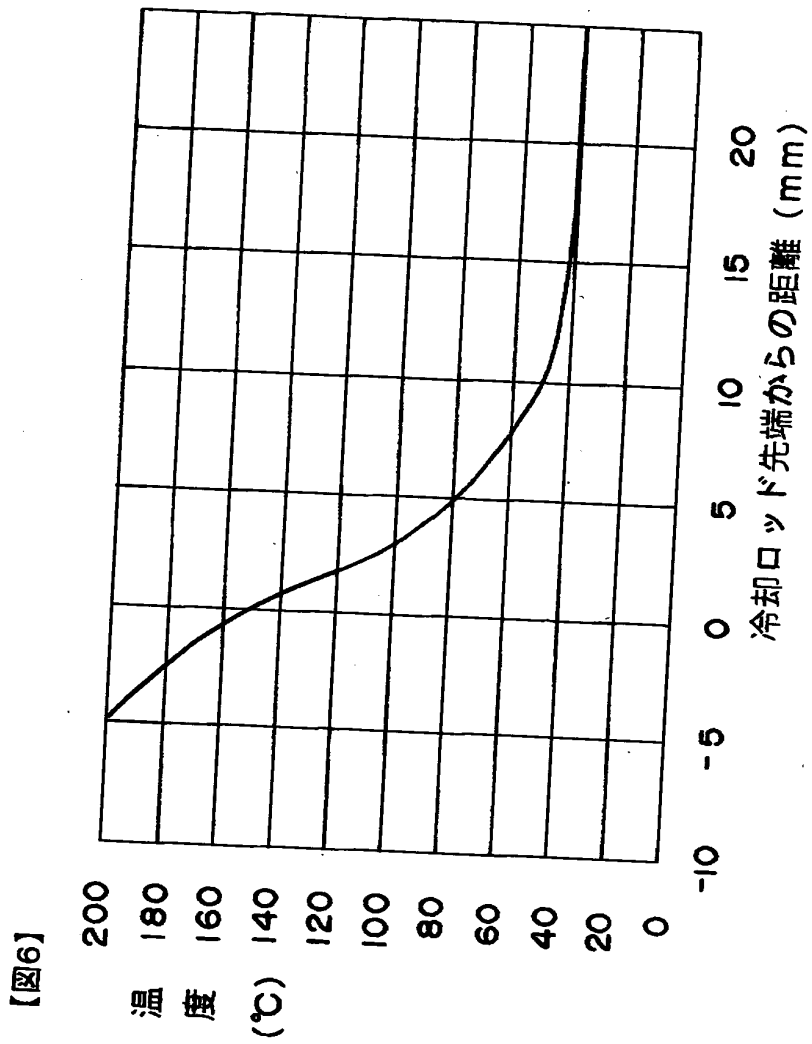


【図 5】

【図5】

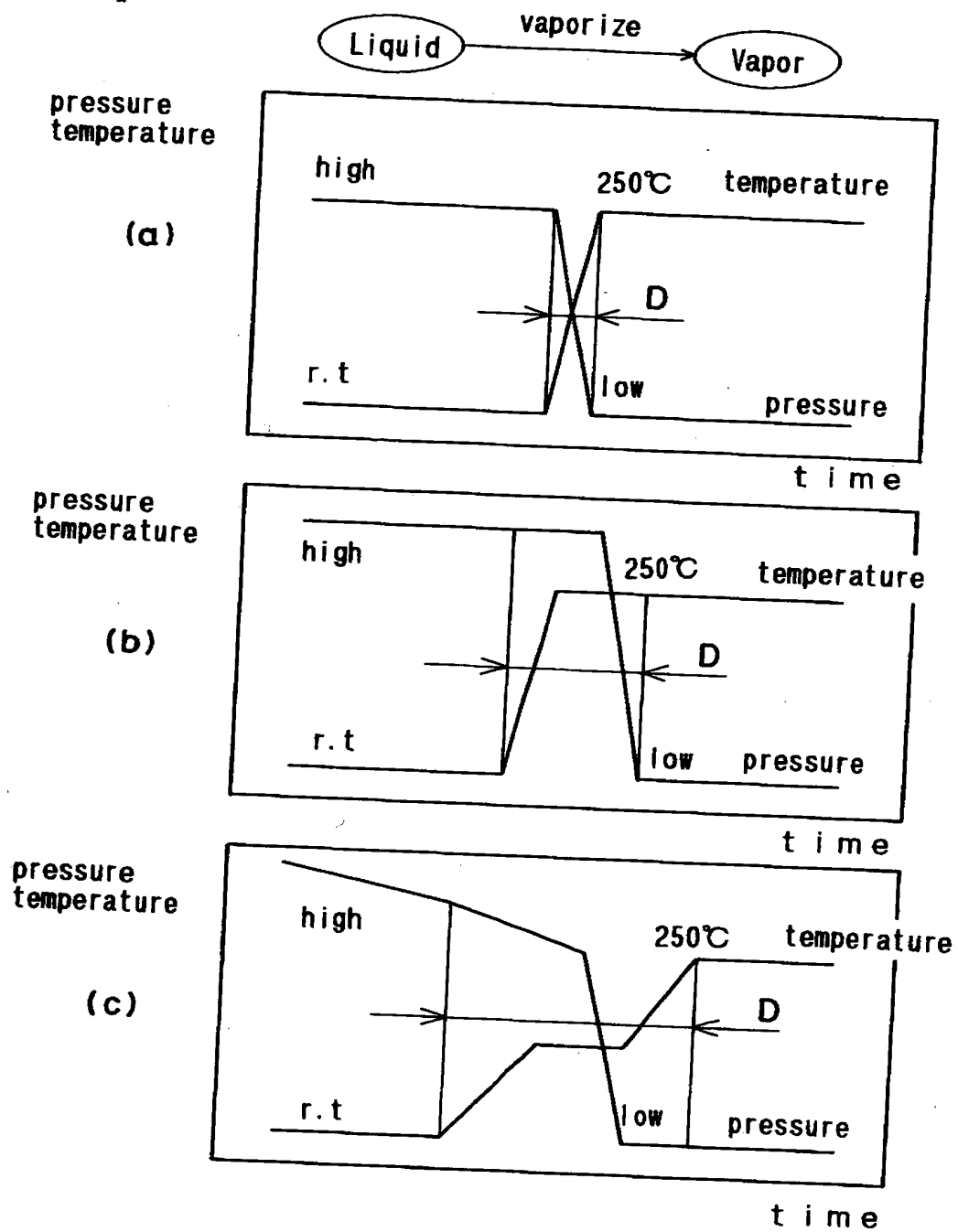


【図6】

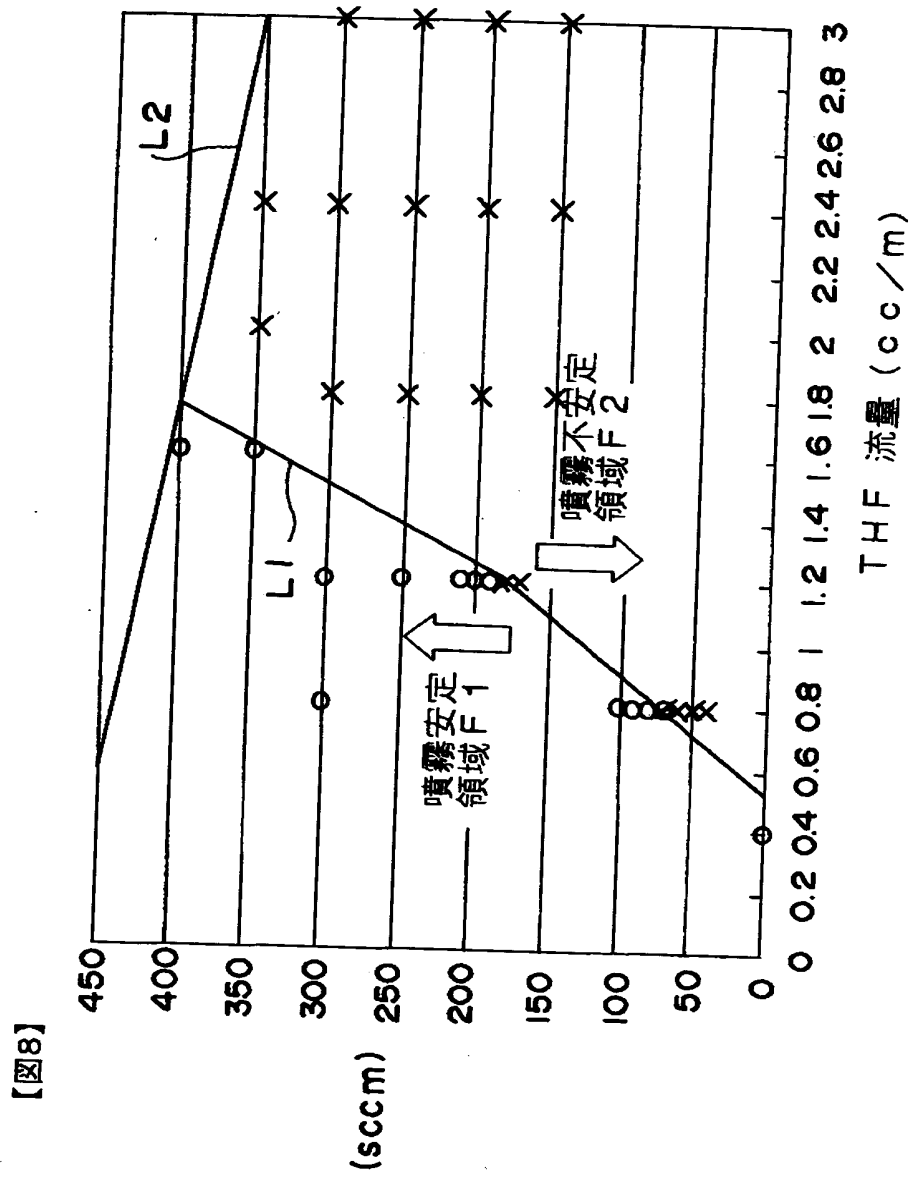


【図 7】

【図 7】

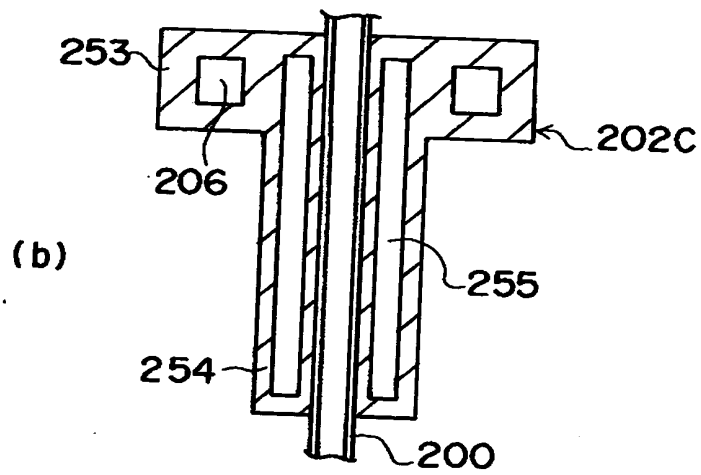
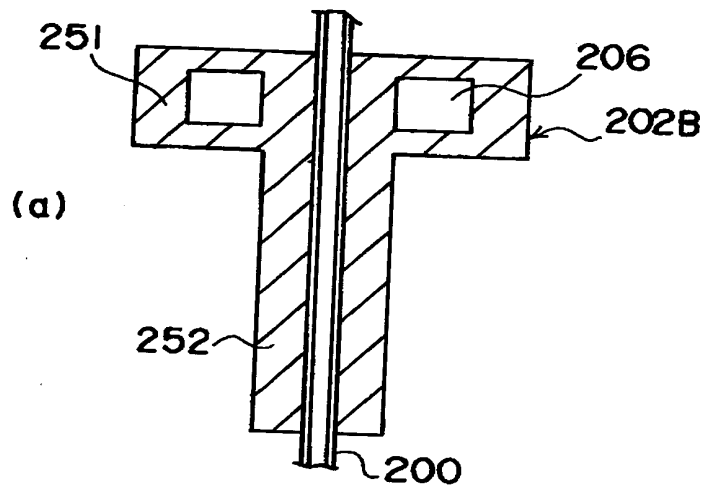


【図8】



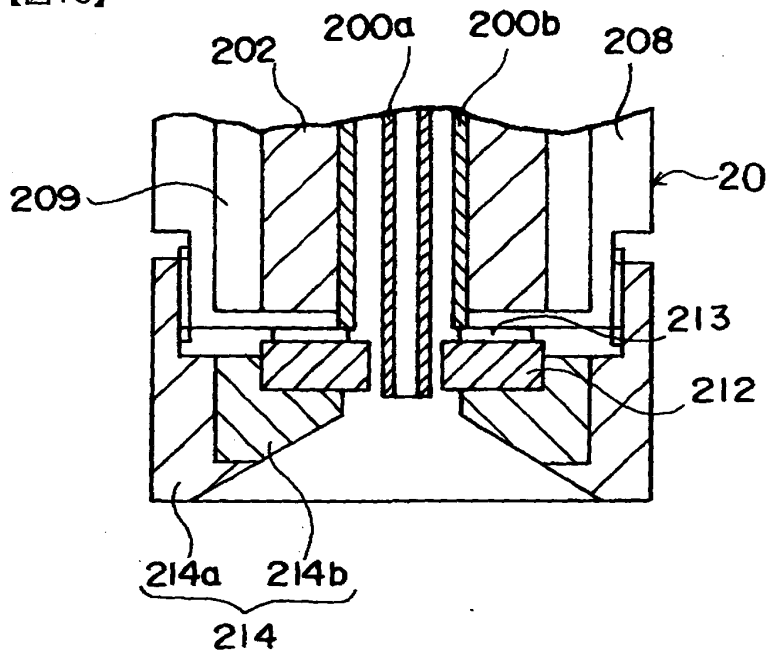
【図9】

【図9】

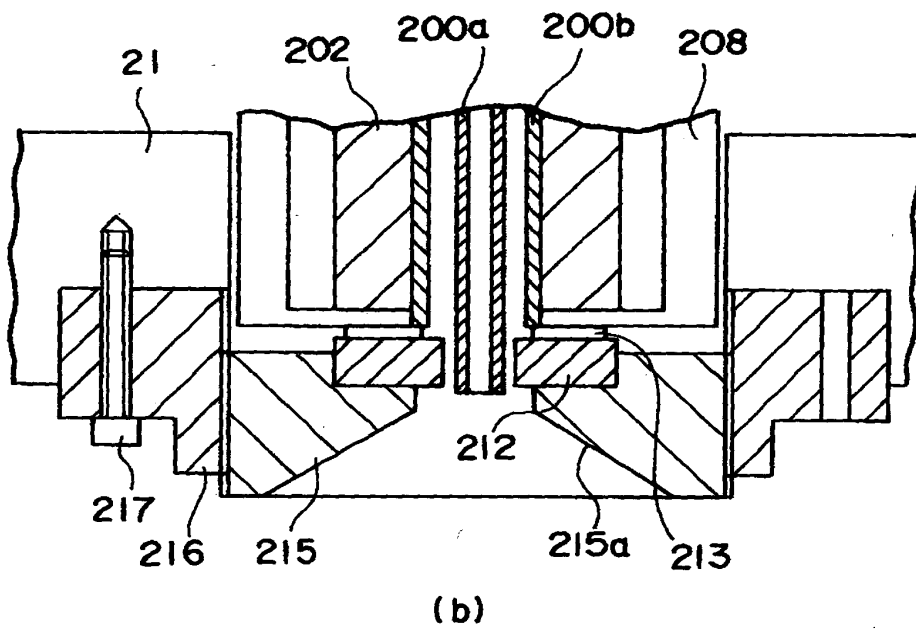


【図10】

【図10】

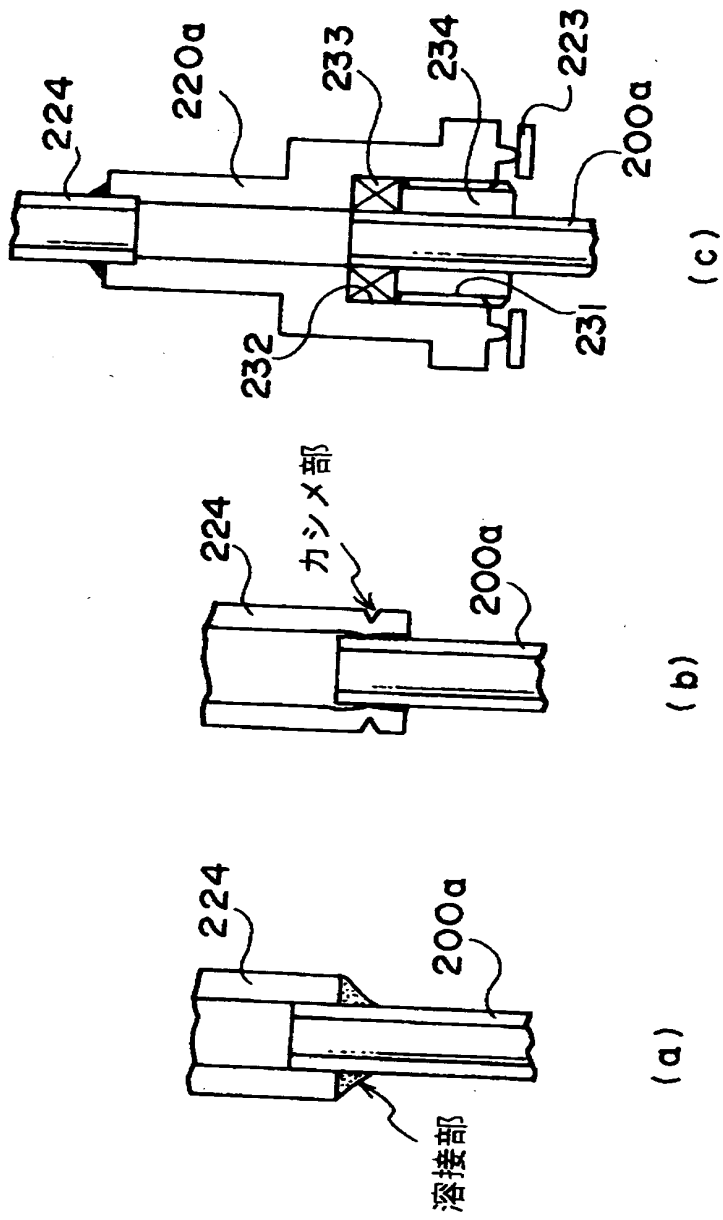


(a)



(b)

【図11】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 液体材料の霧化をより効果的に行わせ、未気化残渣やパーティクルの発生を低減することができる気化器の提供。

【解決手段】 液体材料が流れる内側配管 2 0 0 a と霧化用ガスが流れる外側配管 2 0 0 b とで構成される 2 重管の先端にオリフィス部材 2 1 2 を設け、そのオリフィス部材 2 1 2 と内側配管 2 0 0 a との隙間から霧化用ガスを噴出させる。その結果、液体材料の霧化をより効果的に行うことができ、未気化残渣の発生やパーティクルの発生を低減させることができる。

【選択図】 図 5

特 2000-292758

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2000-292758
受付番号	50001241688
書類名	特許願
担当官	第五担当上席
作成日	平成12年 9月27日

### <認定情報・付加情報>

【提出日】	平成12年 9月26日
-------	-------------

次頁無

【書類名】 手続補正書  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【事件の表示】  
【出願番号】 特願2000-292758  
【補正をする者】  
【識別番号】 000006013  
【氏名又は名称】 三菱電機株式会社  
【代理人】  
【識別番号】 100084412  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 永井 冬紀  
【手続補正 1】  
【補正対象書類名】 特許願  
【補正対象項目名】 提出物件の目録  
【補正方法】 追加  
【補正の内容】  
【提出物件の目録】  
【物件名】 代理権を証明する書面 1  
【援用の表示】 特願 2 0 0 0 - 2 9 2 7 5 7  
【プルーフの要否】 要

特2000-292758

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-292758
受付番号	50001307142
書類名	手続補正書
担当官	東海 明美
作成日	平成12年11月22日

### <認定情報・付加情報>

【提出日】 平成12年10月10日

【補正をする者】

【識別番号】 000006013

【住所又は居所】 東京都千代田区丸の内二丁目2番3号

【氏名又は名称】 三菱電機株式会社

【代理人】 申請人

【識別番号】 100084412

【住所又は居所】 東京都千代田区霞が関3丁目3番1号 尚友会館

後藤・永井特許事務所

【氏名又は名称】 永井 冬紀

次頁無

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[000001993]

1. 変更年月日

1990年 8月27日

[変更理由]

新規登録

住 所

京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地

氏 名

株式会社島津製作所

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000006013]

1. 変更年月日 1990年 8月24日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 東京都千代田区丸の内2丁目2番3号  
氏 名 三菱電機株式会社